

L10-FePd合金電極強磁性トンネル接合におけるスピントルクダイオード効果を用いたミリ波の電氣的検出

著者	向山 広記
号	60
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工博第5208号
URL	http://hdl.handle.net/10097/00120539

氏 名	むかいやま こうき 向山 広記
授 与 学 位	博士 (工学)
学 位 授 与 年 月 日	平成28年3月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 応用物理学専攻
学 位 論 文 題 目	$L1_0$ -FePd 合金電極強磁性トンネル接合における スピントルクダイオード効果を用いたミリ波の電氣的検出
指 導 教 員	東北大学教授 安藤 康夫
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 安藤 康夫 東北大学教授 佐久間 昭正 東北大学教授 北上 修 東北大学准教授 大兼 幹彦

論文内容要旨

[背景・研究目的]

数ナノメートルの薄い絶縁体を2つの強磁性体で挟んだ三層構造は強磁性トンネル接合(MTJ)素子と呼ばれ、2つの磁化の相対角度によって素子抵抗が変化するトンネル磁気抵抗(TMR)効果が観測される。MTJ素子をデバイス応用上では磁化の相対角度をいかに変化させるかが重要となるが、1996年にスピン偏極した電流を流すことで磁化方向が制御可能であることが理論的に提唱された。これはスピントランスファー効果と呼ばれMTJ素子の片方の強磁性層(固定層)によってスピン偏極された電子がもう一方の強磁性層(自由層)の磁化にスピン角運動量の授受を通してスピントルクを与えることで理解されている。スピントルクによって誘起される新規現象の1つとして2005年にスピントルクダイオード(STD)効果が発見された。これはMTJ素子に高周波電流を印加したときに整流作用が生じ、出力電圧に直流電圧成分(V_{DC})が含まれる現象である。半導体ダイオードの整流作用とは異なりSTD効果で生じる V_{DC} は自由層の強磁性共鳴周波数と同じ周波数をもつ高周波電流が印加されたときにのみ共鳴的に増大する。従って任意の周波数をもつ高周波信号の電氣的な検出、すなわち検波を行うことができる。検波周波数を電流・磁場により変調可能、ナノメートルサイズであることに加え半導体ダイオード以上の検波感度 V_{DC}/P_{RF} (P_{RF} : 印加された高周波電力)が実現されていることから次世代の検波素子への応用が期待されている。その一方で解決すべき重要な課題として検波周波数 f_{res} を30 GHz以上に増大させることが挙げられる。30 GHz以上の周波数をもつ高周波はミリ波と呼ばれ、マイクロ波と比較して周波数が高いため高速無線情報通信の実現へ向けて需要が増している周波数である。しかし、これまでに報告されている検波周波数は最大で28 GHzであり、ミリ波帯域で利用するためには検波周波数の更なる増大が必須とされる。また、ミリ波帯域におけるピーク線幅や検波感度といった検波特性に関してはこれまで全く調査されておらず、ミリ波検波素子としての応用を目指す上で検波周波数の増大と併せて議論していくことが重要である。

STD効果を用いた検波素子の検波周波数は自由層に用いる材料の強磁性共鳴周波数におおよそ一致し、結晶磁気異方性定数(K_u)に比例する。従ってSTD効果によってミリ波を検波するためには高 K_u 材料を自由層として用いることが有効であり、高い K_u を有することで知られる $L1_0$ 規則合金を用いることでミリ波の検波が期待できる。その一方で検波

感度と検波周波数には、以下の関係がある。

$$V_{\text{DC}}/P_{\text{RF}} \propto \text{TMR}/\alpha t f_{\text{res}} \quad (1)$$

(α : 磁気緩和定数、 t : 自由層の膜厚)。従ってミリ波帯域では検波感度が必然的に低下してしまうことが懸念され、少しでも感度を高くするためには α が低く、電極として用いたときに高い TMR 比が期待できる $L1_0$ 規則合金を用いることが望まれる。そこで本研究では数ある $L1_0$ 規則合金の中でも α が低く(0.007)、比較的高い TMR 比(約 80 %)が報告されている FePd を自由層に用いることとした。以上の背景を踏まえて本研究では、

- (1) $L1_0$ -FePd を電極とする MTJ 素子において STD 効果によってミリ波を検波すること
 - (2) 検波特性(ピーク線幅や検波感度)を解析することによりミリ波検波素子応用へ向けた知見を得ること
- の2つを目的として研究を行った。

[実験結果]

1. FePd 合金電極 MTJ 素子の作製

高 K_u 材料である FePd を自由層に用いると検波周波数が高くなるため、式(1)から予想されるように検波感度が低くなる。従って、少しでも感度を高くするには高い TMR 比を保ったまま FePd 膜厚を薄くする必要がある。高い TMR 比を得るためには絶縁層の MgO の結晶性が重要である。FePd 膜厚を 3.5 nm、MgO 膜厚を 2 nm として Ar ガス圧および熱処理温度の条件を検討したところ、Ar ガス圧を 1.0 Pa、熱処理温度を 300 °C としたときに先行研究と同等の TMR 比 = 60%を得ることができた。FePd 層の薄膜化を試みたところ、高い磁気異方性を保持したまま膜厚を 2 nm まで極薄化させることに成功した。一方で検波回路から直流電圧を効率良く出力として取り出すためには MTJ 素子の抵抗値を低くする必要がある。MgO 膜厚の薄膜化による低抵抗化を試みたところ、MgO 膜厚を 0.85 nm まで低減させることにより、微小サイズにおいても半導体ダイオードを下回る低抵抗 MTJ 素子($RA < 10 \Omega\mu\text{m}^2$)を作製することができた。

2. ミリ波検波用 MTJ 素子のための微細加工プロセスの確立

空間を伝搬するミリ波は微弱であり、STD 効果を励起するためには自由層の面積を数百平方ナノメートル程度に微細化し、効率的にミリ波帯の高周波電流を MTJ 素子に印加することが必要とされる。そこで、本研究では電子線リソグラフィを用いた微細加工プロセスを構築した。また、上部・下部電極間に現れる寄生容量を介して高周波電流が漏洩することを防ぐため、上部・下部電極の対向面積を $20 \mu\text{m}^2$ まで微細化した。一般的に、素子サイズが微小になると電子線レジストのリフトオフが困難となるが、本プロセスでは酸素プラズマアッシングを行うことにより、産業用の高価なリフトオフ装置を使うことなく超音波マルチ洗浄により電子線レジストのリフトオフに成功した。また、Ar イオンミリングによって微小素子作製の際のミリング終了位置を原子層単位で最適化することで、原子の再付着に起因した電氣的リークを抑制できた。このプロセスでは1つの基板に作製できる 100 個以上の MTJ 素子のうち、8 割以上の素子が TMR 比 = 20%および $RA = 4 \Omega\mu\text{m}^2$ の設計通りの特性を示しており、ミリ波検波用微小 MTJ 素子を安定的に作製可能な微細加工プロセスを確立することに成功した。

3. STD 効果を用いたミリ波の検波

MgO (001)基板/ Cr (40)/ Pd (10)/ FePd (2)/ Co₄₀Fe₄₀B₂₀ (0.5)/ MgO (0.85)/ Co₄₀Fe₄₀B₂₀ (2)/ Ru (0.85)/ Co₇₅Fe₂₅ (2)/ IrMn (10)/ Ta (5)/ Ru (8) (単位 : nm)からなる試料を直径 100 nm の微小 MTJ 素子に微細加工し、STD 効果の測定を行った。外部磁場 (H)は膜面垂直方向に印加し、高周波電力(P_{RF})は 25 μ W とした。図 1(a)に示すようにミリ波帯域でピークが観測され、ミリ波を電氣的に検出することに成功した。ピーク周波数の外部磁場依存性を図 1(b)に示す。ピーク周波数は外部磁場が大きくなるにつれて低周波数側にシフトしていった。最大のピーク周波数は $H=0$ Oe での 40 GHz であり、先行研究で報告されている 28 GHz を大きく凌駕する世界最高の検波周波数を達成することに成功した。無磁場下におけるミリ波検波は磁場用コイルを回路から取り除くことによるデバイスサイズの小型化および消費電力の低減という観点から大きな意義をもつ成果である。詳細な考察を行うため外部磁場依存性を以下の Kittel の式による解析を行った。

$$f = \gamma(-H + H_k^{\text{eff}})/2\pi \quad (2)$$

(γ : 磁気回転比、 H_k^{eff} : 有効異方性磁界)。その結果、 $\gamma=19.46$ MHz/Oe、 $H_k^{\text{eff}}=12.7$ kOe としたときに実験結果に最もよく一致した。FePd 自由層の磁化曲線から H_k^{eff} は 14 kOe と見積もられており、フィッティングから算出された H_k^{eff} はその値とおおよそ一致している。従って、ミリ波帯域で観測されたピークは高い結晶磁気異方性を有する $L1_0$ -FePd に起因していることが明らかとなった。一方で、MTJ 素子の直径を 80 nm から 300 nm まで系統的に変え、素子サイズが検波周波数へ及ぼす影響について検討した。その結果、素子サイズの減少に伴い検波周波数が高くなるということが分かった。これは素子サイズの微小化に伴う膜面垂直方向の反磁界の低下によって FePd の H_k^{eff} が増大したためであると考えられる。また、無磁場下においても 4 GHz ほど周波数が変化しており、適切なサイズの素子を選択することで外部磁場や直流電流を発生させるための余分な消費電力を必要とせずに検波周波数を変調できることを見出すことに成功した。

4. ミリ波検波特性の解析

ミリ波検波素子応用へ向けた知見を得るため、検波時の共鳴ピーク線幅と検波感度の解析を行った。ピーク線幅は約 1000 MHz であり理論値比較すると 2 倍ほど増大していることが分かった。このような線幅の増大は他グループからも報告されており、空間的に不均一な磁化の歳差運動(マルチモード)が原因であると考察されている。本研究で作製した

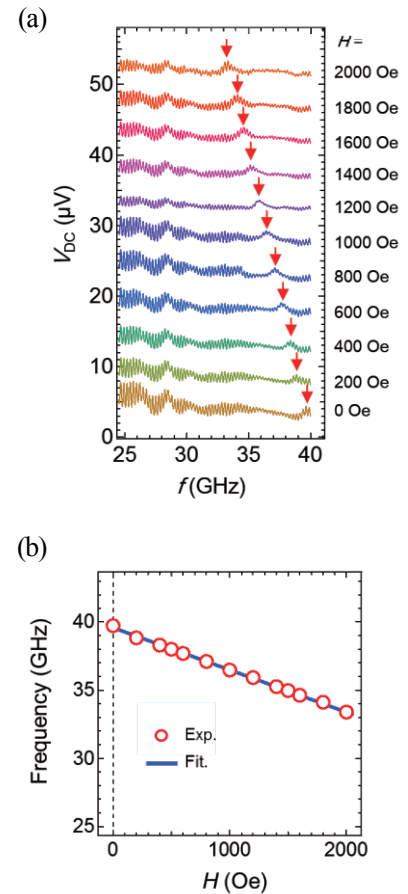


図 1(a) 各外部磁場下におけるスピントルクダイオードスペクトル、(b) ピーク周波数の外部磁場依存性

FePd では結晶粒ごとに $L1_0$ 規則度の不均一性に起因して磁気異方性分散が存在すると考えられ、各結晶粒で共鳴周波数がバラついたことで線幅が増大したものと示唆される。一方、検波感度は約 0.04 mV/mW であり理論値より 2 桁低かった。この乖離の原因としてはマルチモードによる磁気抵抗変化量の減少もしくは寄生容量を介した高周波電流の漏洩が考えられる。どちらが支配的な要因なのか判別するために検波特性の高周波電力依存性を調査した。高周波電力を大きくしていくとスピントルクも増大していくため磁化の歳差運動のコヒーレント性が高まり、均一モードが励起されると考えられる。マルチモードが支配的な要因であれば V_{DC} の実験値は理論値へと近づいていくが、高周波電流の漏洩が支配的な要因であれば実験値と理論値には常に一定の乖離がみられる。図 2(a) に V_{DC} の高周波電力依存性を理論値と比較した結果を示す。高周波電力を大きくしても理論値とは常に一定の乖離が見られており、低感度の原因は高周波電流の漏洩であることが明らかとなった。一方で図 2(b) に示したように高周波電力が増大すると線幅は理論値へと近づくように減少していき、それと同時に歳差角度の増大も観測された。これらはスピントルクの増大により磁化の歳差運動がマルチモードから均一モードへと遷移したことを示しており、マルチモードも低感度の一因であるということが示唆された。以上の解析結果からミリ波検波素子として応用するためには、FePd の磁気異方性の分散とマルチモードの歳差運動の抑制、およびミリ波の漏洩の抑止が必要であるという知見を得ることに成功した。

[本研究の成果]

本研究では $L1_0$ -FePd を電極とした MTJ 素子で STD 効果により最大 40 GHz のミリ波を検波することに成功した。この検波周波数は先行研究の値を大きく凌駕するものであり、作製した STD 素子は検波周波数という観点では世界最高の性能を有していると言える。さらに検波感度やピーク線幅などについて磁化ダイナミクスの観点から応用へ向けた知見を示すことに成功した。これらの成果は STD 効果を用いたミリ波検波素子の開発に大きく貢献するものと考えられる。

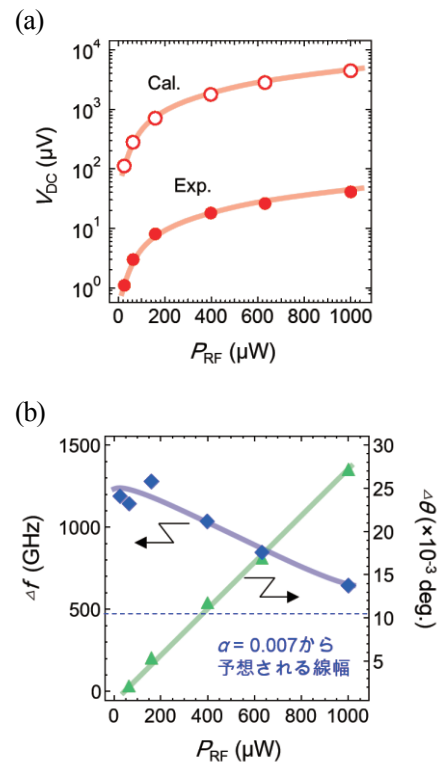


図 2(a) 各高周波電力における検波感度の実験値と理論値の比較、(b) ピーク線幅と歳差角度の高周波電力依存性。

論文審査結果の要旨

第1章は序論である。スピントロニクスとキーデバイスである強磁性トンネル接合に関して述べた後、スピントルクダイオード効果に関しての基礎からデバイス応用まで詳細に記述されている。そのなかで、同効果を用いたミリ波検出の利点を述べた後、これを実現するための $L1_0$ 規則合金に関して述べ、目的と実現目標を掲げている。

第2章は実験方法である。FePd を含む強磁性トンネル接合をスパッタ法により作製し、フォトリソグラフィ、電子線リソグラフィ等を用いて加工した結果について述べている。また試料の評価方法として、結晶構造、磁気特性、スピントルクダイオード効果について、詳細を述べている。

第3章はFePd合金電極MTJの作製に関する結果を述べている。MgO成膜時のArガス圧が高いほどMgOの(001)配向性が良いことが分かり、 $P_{Ar} = 1.0$ PaでMgO障壁層を成膜したときに $T_a = 350^\circ\text{C}$ で最大200%のTMR比を観測することができた。 $T_a = 300^\circ\text{C}$ で熱処理することで最大27%のTMR比を観測し、先行研究と同等の特性を有するFePd合金電極MTJの作製に成功した。さらにMgO膜厚を0.85 nmとすることでRAが $10\ \Omega\ \mu\text{m}^2$ 以下となり、微小サイズにおいても半導体ダイオードの抵抗値を下回る低抵抗MTJが作製できた。本章で得られた結果を踏まえ、MgO(001)基板/Cr(40)/Pd(10)/FePd(2)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(0.5)/MgO(0.85)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(2)/Ru(0.85)/Co₇₅Fe₂₅(2)/IrMn(10)/Ta(5)/Ru(8)の膜構成で $T_a = 300^\circ\text{C}$ で熱処理した試料をこの後の実験に用いた。

第4章はミリ波検波を可能とする素子構造とそのため微細加工プロセスの構築に関して述べている。ミリ波を効率的にMTJへと伝送するため、コプレーナウェーブガイド型上部電極を設計した。素子の特性インピーダンスは $49.2\ \Omega$ と設計上は高周波の反射を大きく低減することが期待できる。また寄生容量を低減するためコプレーナウェーブガイド型上部電極のS線との対向部が $4\ \mu\text{m}$ と細い構造を有する下部電極を設計・作製した。対向面積は $20\ \mu\text{m}^2$ と先行研究と比較して小さく、寄生容量の大幅な低減が実現できると考えられる。また、電子線リソグラフィにより重ね合わせ露光を用いた高度な微細加工プロセスを構築した。酸素プラズマアッシング処理、およびArイオンミリング終了位置をPd直上にするにより、素子の歩留りを大幅に改善することに成功した。これらにより、TMR比 = 23%およびRA = $8\ \Omega\text{m}^2$ の高周波測定用の微小FePd合金電極MTJ素子を作製することに成功した。

第5章はスピントルクダイオード効果を用いたミリ波の検波に関して述べている。直径 $100\ \text{nm}\ \phi$ のFePd合金電極微小MTJにおいてスピントルクダイオード効果を用いることで最大40 GHzのミリ波を検波することに成功した。これは先行研究で達成された27 GHzを大きく凌駕する世界最高の検波周波数である。また、Kittelの式による周波数の解析から、観測されたピークは高結晶磁気異方性を有するFePdの共鳴に起因していることが確かめられた。さらに、無磁場下においてもミリ波の検波に成功した。これは、デバイスサイズの小型化および動作時の低消費電力化が実現できることを意味し、応用上大きな意義をもつ。

第8章は総括である。本研究では検波周波数という観点では世界最高の性能を有するスピントルクダイオード素子を作製することに成功した。また、検波周波数だけでなく、ダイオード感度や共鳴ピーク線幅などについて磁化ダイナミクス現象の観点から応用へ向けた指針を示すことに成功した。これらはスピントルクダイオード効果を用いたミリ波検波素子の開発に大きく貢献するものである。本結果は無磁場動作に関して実験と理論の両観点から包括的に議論した極めて貴重な結果であり、スピントロニクスデバイスの研究、開発ならびに応用物理学の発展に大きく貢献するものである。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。